

KONCENTRACIJE AKTIVNOSTI ^{210}Po I ^{210}Pb U DAGNJAMA (*Mytilus galloprovincialis*) TE PROCJENA UKUPNE GODIŠNJE EFEKTIVNE DOZE ZA PRIOBALNO STANOVNIŠTVO REPUBLIKE HRVATSKE

Matea Rogić¹, Martina Rožmarić Mačefat^{1*}, Delko Barišić¹, Ljudmila
Benedik², Petra Planinšek²

¹Laboratorij za radioekologiju, Institut Ruđer Bošković, Zagreb, Hrvatska

^{*}Environment Laboratories, International Atomic Energy Agency,
MC 98000, Monaco

²Odsek za znanosti o okolju, Institut Jožef Stefan, Ljubljana, Slovenija
e-mail: mrogic@irb.hr

UVOD

^{210}Po i ^{210}Pb članovi su prirodnog radioaktivnog niza ^{238}U . ^{210}Po je 99,99 % alfa emiter, ($T_{1/2} = 138,4$ d; $E_{\alpha} = 5,3$ MeV), dok se ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22,2$ g) emisijom beta zračenja raspada na ^{210}Bi ($T_{1/2} = 5,0$ d) koji se dalje beta emisijom raspada na ^{210}Po . Zbog svojih nuklearnih svojstava vrlo su radiotoksični, s visokim doznim faktorima, pa je njihovo precizno određivanje uz niske granice detekcije neophodno, posebno u hrani i vodi za piće.

^{210}Po i ^{210}Pb su prisutni u morskom okolišu u koji uglavnom dospijevaju iz prirodnih izvora (depozicijom iz atmosfere, dotokom slatkih voda te donošenjem materijala s kopna tokovima rijeka i podzemnih voda), ali i kao posljedica ljudske djelatnosti. Oba se radionuklida u okolišu vežu na površine krutih čestica uključujući i tkiva živih organizama. Pri tom se ^{210}Po uglavnom veže na proteine te lako dopire u citoplazmu stanica zbog čega se lakše asimilira u višim morskim organizmima za razliku od ^{210}Pb koje se uglavnom veže na mineralne frakcije [1].

Dagnje (*Mytilus galloprovincialis*) u svojem tkivu akumuliraju tvari (radionuklide, teške metale itd.) iz morskog okoliša filtriranjem i do 80 L morske vode dnevno te su pogodne za praćenje stanja morskog okoliša kao bioindikatorski organizmi. Konzumiranje dagnji u svakodnevnoj prehrani, s druge pak strane, može rezultirati povišenim izlaganjem stanovništva zračenju uslijed unosa povišenih koncentracija ^{210}Po i ^{210}Pb . Stoga su u ovom radu prikazani rezultati koncentracija aktivnosti ^{210}Po i ^{210}Pb u dagnjama uzorkovanim duž jadranske obale u proljeće i jesen 2011. g. te su

procijenjene pripadajuće ukupne godišnje efektivne doze koje odraslo stanovništvo hrvatskog priobalja primi njihovom konzumacijom.

MATERIJALI I METODE

Dagnje su uzorkovane na 13 lokacija duž jadranske obale [2] u proljeće i jesen 2011. g. Nakon pripreme (odvajanja tkiva dagnji od ljuštura, sušenja do konstantne mase te homogeniziranja) uzorci su razoreni u smjesi konc. $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}_2$ te konc. HCl , a za praćenje iskorištenja radiokemijskog odjeljivanja korišteni su standardi ^{209}Po ($(0,3204 \pm 0,0061) \text{ Bq g}^{-1}$, Eckert & Ziegler) i Pb^{2+} (10 mg mL^{-1} , Merck). Polonij i olovo su potom odijeljeni na Sr smoli (Eichrom Industries Inc.) prema postupku opisanom u [3]. Izvor $^{209,210}\text{Po}$ pripremljen je samodepozicijom na Ag pločici u $0,1 \text{ M HCl}$ te mjereno na alfa spektrometru s PIPS detektorom aktivne površine 450 mm^2 i efikasnosti 30 %, (Alpha Analyst, Canberra), dok je izvor ^{210}Pb pripremljen taloženjem PbSO_4 i mjereno na plinskom proporcionalnom brojaču (TENNELEC LB4100-W) nakon uspostave radioaktivne ravnoteže s radionuklidom potomkom ^{210}Bi .

REZULTATI

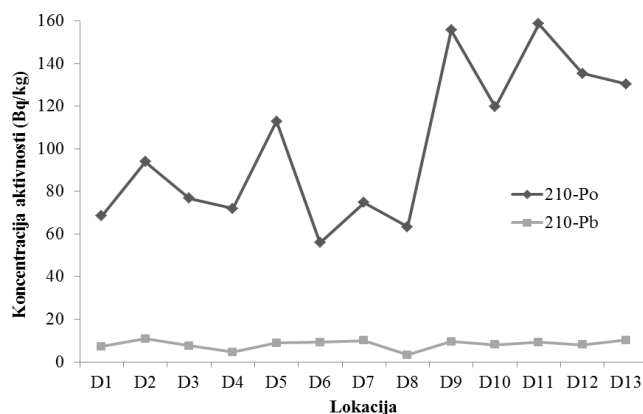
Iz rezultata prikazanih u Tablici 1 vidljivo je da su koncentracije aktivnosti ^{210}Po i ^{210}Pb u dagnjama više u proljeće nego u jesen. Razlog tome su pojačana bioprodukcija planktonskih organizama kojima se dagnje hrane filtrirajući morsku vodu u proljetnom dijelu godine te intenzivnija kišna razdoblja koja prethode proljetnom uzorkovanju.

Prosječne godišnje koncentracije aktivnosti ^{210}Po , prikazane na Slici 1, kreću se u rasponu od $(55,9 \pm 4,9) \text{ Bq kg}^{-1}$ svježe mase u Kaštel Gomilici do $(158,6 \pm 10,4) \text{ Bq kg}^{-1}$ u Malom Stonu. Varijacije po lokacijama ukazuju na nešto više aktivnosti ^{210}Po na području južnog Jadrana (D9 – D13), što je rezultat pojačanog dotoka površinskih voda (rijeka Žrnovnice, Neretve i Omble) te podzemnih voda i materijala s kopna na tim područjima, što uključuje i dreniranje znatne površine teritorija Bosne i Hercegovine. Za razliku od ^{210}Po , aktivnosti ^{210}Pb bitno ne variraju i u rasponu su od $(3,3 \pm 2,2) \text{ Bq kg}^{-1}$ svježe mase u Vranjicu do $(10,9 \pm 4,3) \text{ Bq kg}^{-1}$ u Raškom zaljevu.

Omjeri aktivnosti $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ u širokom su rasponu (od 6,0 do 19,3) što upućuje na činjenicu da ^{210}Po nije prisutan samo kao produkt raspada akumuliranog ^{210}Pb već da se direktno iz morske vode akumulira u tkivu dagnji zbog svojeg visokog afiniteta vezanja na organsku tvar [4], dok se ^{210}Pb uglavnom adsorbira na mineralnim frakcijama (ljuštura).

Tablica 1. Koncentracije aktivnosti ^{210}Po i ^{210}Pb (Bq kg^{-1} svježe mase) s prikazanom proširenom mjernom nesigurnošću ($k = 2$) u dagnjama uzorkovanim u travnju i listopadu 2011. g.

	^{210}Po	^{210}Pb	^{210}Po	^{210}Pb
Lokacija	04 / 2011		10 / 2011	
D1-Limski kanal	$88,2 \pm 5,3$	$10,4 \pm 2,8$	$48,9 \pm 4,2$	$3,9 \pm 1,1$
D2-Raški zaljev	$116,4 \pm 8,4$	$6,4 \pm 1,5$	$71,5 \pm 1,8$	$15,4 \pm 4,9$
D3-Bakarski zaljev	$101,3 \pm 7,9$	$8,7 \pm 0,9$	$52,2 \pm 2,2$	$6,2 \pm 1,8$
D4-Šibenik	$96,0 \pm 7,0$	$6,9 \pm 0,8$	$47,8 \pm 1,8$	$2,1 \pm 1,2$
D5-Marina Poljica	$145,6 \pm 10,9$	$13,1 \pm 1,2$	$80,2 \pm 3,2$	$4,5 \pm 1,5$
D6-Kaštel Gomilica	$77,9 \pm 5,3$	$12,5 \pm 2,4$	$33,9 \pm 1,9$	$6,0 \pm 1,7$
D7-Giričić	$123,4 \pm 11,5$	$13,3 \pm 1,6$	$26,2 \pm 2,8$	$6,6 \pm 2,5$
D8-Vranjic	$94,1 \pm 8,1$	$4,4 \pm 0,8$	$32,6 \pm 1,6$	$2,2 \pm 1,4$
D9-Stobreč	$236,1 \pm 19,4$	$12,8 \pm 2,4$	$75,2 \pm 6,5$	$6,2 \pm 1,1$
D10-Bistrina	$137,3 \pm 7,2$	$11,4 \pm 1,4$	$102,2 \pm 4,5$	$4,7 \pm 1,9$
D11-Mali Ston	$179,6 \pm 10,2$	$14,6 \pm 2,1$	$137,6 \pm 4,5$	$3,8 \pm 1,2$
D12-Drače	$174,9 \pm 20,9$	$11,5 \pm 1,9$	$95,8 \pm 9,2$	$4,6 \pm 1,8$
D13-Dubrovnik	$196,5 \pm 14,3$	$11,2 \pm 0,7$	$64,4 \pm 2,2$	$9,0 \pm 3,1$



Slika 1. Prosječne koncentracije aktivnosti ^{210}Po i ^{210}Pb (Bq kg^{-1} svježe mase) u dagnjama u 2011. g.

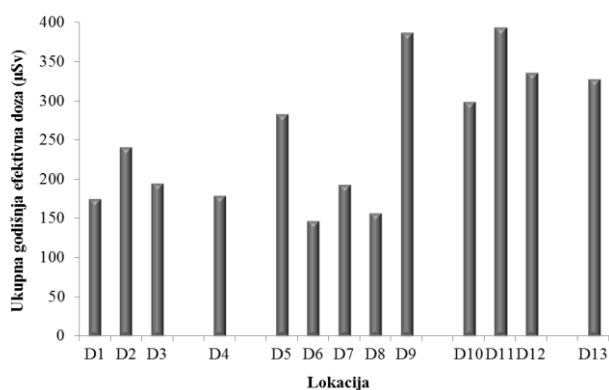
Zbog ranije spomenute izloženosti stanovništva zračenju unošenjem ^{210}Po i ^{210}Pb u organizam kroz hranu i vodu za piće, a na temelju dobivenih rezultata koncentracija aktivnosti u dagnjama, izračunate su ukupne

godišnje efektivne doze po pojedinoj lokaciji za odraslo stanovništvo priobalja prema jednadžbama (1) i (2):

$$E_d = A_c \cdot q \cdot C_f \quad (1)$$

$$D = \Sigma A_c \cdot q \cdot C_f \quad (2)$$

pri čemu je E_d godišnja efektivna doza za dani radionuklid izražena u μSv , A_c koncentracija aktivnosti radionuklida u Bq kg^{-1} , q godišnji unos dagnji za koji je pretpostavljeno da iznosi 2 kg po stanovniku (usmena predaja), C_f dozni faktor koji za ^{210}Po iznosi $1,2 \mu\text{Sv Bq}^{-1}$, a za ^{210}Pb $0,69 \mu\text{Sv Bq}^{-1}$, dok je D ukupna godišnja efektivna doza dana u μSv . Dobiveni rezultati prikazani su na Slici 2.



Slika 2. Ukupne godišnje efektivne doze koje je odraslo stanovništvo priobalja primilo od ^{210}Po i ^{210}Pb konzumiranjem dagnji u 2011. g.

Ukupne godišnje efektivne doze koje je odraslo stanovništvo priobalja primilo konzumiranjem dagnji u 2011. g. kreću se u rasponu od $146,9 \mu\text{Sv}$ u Kaštel Gomilici do $393,3 \mu\text{Sv}$ u Malom Stonu, pri čemu je doprinos ^{210}Po u ukupnoj dozi na svim lokacijama preko 90 %. Povišene vrijednosti primljenih doza očekivano su dobivene za lokacije južnog Jadrana (D9 – D13) što obuhvaća područja na kojima se najvećim dijelom uzgajaju dagnje i kamenice u Hrvatskoj. Dobivene vrijednosti usporedive su s ukupnim godišnjim efektivnim dozama koje od ^{210}Po i ^{210}Pb konzumacijom dagnji primi stanovništvo drugih priobalnih zemalja [5,6].

ZAKLJUČAK

Praćenjem koncentracija aktivnosti ^{210}Po i ^{210}Pb u dagnjama (*Mytilus galloprovincialis*) u proljeće i jesen 2011. g. uočeno je da su vrijednosti

najviše u proljeće te da su prosječne godišnje koncentracije aktivnosti ^{210}Po više na južnom Jadranu, dok za ^{210}Pb bitno ne variraju po lokacijama.

Izračunati omjeri aktivnosti $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ upućuju na činjenicu da ^{210}Po u tkivu dagnji potječe direktno akumulacijom iz okoliša, a manjim dijelom kao produkt raspada akumuliranog ^{210}Pb .

Izračunate ukupne godišnje efektivne doze za priobalno stanovništvo u prosjeku iznose 254,6 μSv pri čemu su najviše vrijednosti dobivene za područje južnog Jadrana. Udio ^{210}Po u ukupnoj dozi u prosjeku iznosi 95 %. Dobiveni rezultati usporedivi su s dozama koje odraslo stanovništvo primi konzumacijom dagnji u susjednim zemaljama.

ZAHVALA

Rad je izrađen uz financijsku potporu Ministarstva znanosti, obrazovanja i športa Republike Hrvatske (bilateralni projekt «Radiokemijske metode za određivanje radionuklida u uzorcima vode»), Ministarstva za visoko školstvo, znanost in tehnologiju Republike Slovenije (bilateralni projekt BI-HR/10-11-007) te sredstvima Ugovora s Državnim zavodom za radiološku i nuklearnu sigurnost „Sustavno ispitivanje radioaktivnosti u morskim indikatorskim organizmima.

LITERATURA

- [1] Carvalho P.F, Fowler S.W. A double-tracer technique to determine relative importance of water and food as sources of polonium-210 to marine prawns and fish. *Mar Ecol Prog Ser* 1994; 103: 251–264.
- [2] Rožmarić Mačefat M, Rogić M, Barišić D, Benedik Lj, Štok M. Sustavno praćenje radioaktivnosti priobalnih voda Jadrana korištenjem dagnji (*Mytilus galloprovincialis*) kao bioindikatora. Zbornik radova Devetog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja, 2013.
- [3] Vreček P, Benedik L, Pihlar B. Determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in sediment and soil leachates and in biological materials using a Sr-resin column and evaluation of column reuse. *Appl Radiat Isot* 2004; 60: 717–723.
- [4] Durand J.P, Goudard F, Barbot C, Pieri J, Fowler S.W, Cotret O. Ferritin and hemocyanin: ^{210}Po molecular traps in marine fish, oyster and lobster. *Mar Ecol Prog Ser* 2002; 233: 199–205.
- [5] Ugur A, Yener G, Bassari A. Trace metals and ^{210}Po (^{210}Pb) concentrations in mussels (*Mytilus galloprovincialis*) consumed at western Anatolia. *Appl Radiat Isot* 2002; 57: 565–571.
- [6] Štok M, Smodiš B. Levels of ^{210}Po and ^{210}Pb in fish and molluscs in Slovenia and the related dose assessment to the population. *Chemosphere* 2011; 82: 970–976.

ACTIVITY CONCENTRATIONS OF ^{210}Po AND ^{210}Pb IN MUSSELS (*Mytilus galloprovincialis*) WITH TOTAL ANNUAL EFFECTIVE DOSE ASSESSMENT TO THE COASTAL POPULATION OF THE REPUBLIC OF CROATIA

Matea Rogić¹, Martina Rožmarić Mačefat^{1*}, Delko Barišić¹, Ljudmila Benedik², Petra Planinšek²

¹Laboratory for Radioecology, Rudjer Boskovic Institute, Zagreb, Croatia

^{*}Environment Laboratories, International Atomic Energy Agency,
MC 98000, Monaco

²Department of Environmental Sciences, Jozef Stefan Institute, Ljubljana,
Slovenia

e-mail: mrogic@irb.hr

^{210}Po and ^{210}Pb are naturally occurring radionuclides from ^{238}U decay chain. They are highly radiotoxic, contributing significantly to total internal doses received through ingestion (food and drinking water). For radiological impact assessment they have to be monitored in foodstuffs known to have elevated ^{210}Po and ^{210}Pb activity concentrations. Mussels, *Mytilus galloprovincialis*, accumulate ^{210}Po and ^{210}Pb from the marine environment through seawater filtration. Due to high ^{210}Po affinity for organic matter its accumulation in mussel tissue is significantly higher than ^{210}Pb , which can result in higher radiation exposure from mussel consumption.

The aim of the study was determination of ^{210}Po and ^{210}Pb in mussels, *Mytilus galloprovincialis*, sampled in spring and autumn of 2011 along the Croatian Adriatic coast with the related dose assessment for the coastal population. For their determination a procedure for simultaneous separation from mussel samples was used. After sample preparation and addition of ^{209}Po tracer and Pb^{2+} carrier radionuclides were separated on Sr resin. $^{209,210}\text{Po}$ source for alpha spectrometry was prepared by self-deposition on Ag disc, while lead was precipitated as PbSO_4 and the beta activity of its daughter ^{210}Bi was counted on a gas proportional counter.

The obtained results for ^{210}Po were in range from $(26,2 \pm 2,8) \text{ Bq kg}^{-1}$ to $(236,1 \pm 19,4) \text{ Bq kg}^{-1}$, and for ^{210}Pb from $(2,1 \pm 1,2) \text{ Bq kg}^{-1}$ to $(15,4 \pm 4,9) \text{ Bq kg}^{-1}$ fresh weight. The total annual effective doses were $254,6 \mu\text{Sv}$ on average, with 95 % contribution of ^{210}Po .